

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-189159

(P2001-189159A)

(43) 公開日 平成13年7月10日 (2001.7.10)

(51) Int.Cl.⁷

識別記号

F I

テーマコード(参考)

H 0 1 M 8/02
8/10H 0 1 M 8/02
8/10

B 5 H 0 2 6

審査請求 未請求 請求項の数 9 O L (全 11 頁)

(21) 出願番号 特願2000-314884(P2000-314884)

(22) 出願日 平成12年10月16日 (2000. 10. 16)

(31) 優先権主張番号 特願平11-298203

(32) 優先日 平成11年10月20日 (1999. 10. 20)

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000004374

日清紡績株式会社

東京都中央区日本橋人形町2丁目31番11号

(72) 発明者 斎藤 一夫

千葉県千葉市緑区大野台1-2-3 日清

紡績株式会社研究開発センター内

(72) 発明者 萩原 敦

千葉県千葉市緑区大野台1-2-3 日清

紡績株式会社研究開発センター内

(74) 代理人 100079304

弁理士 小島 隆司 (外2名)

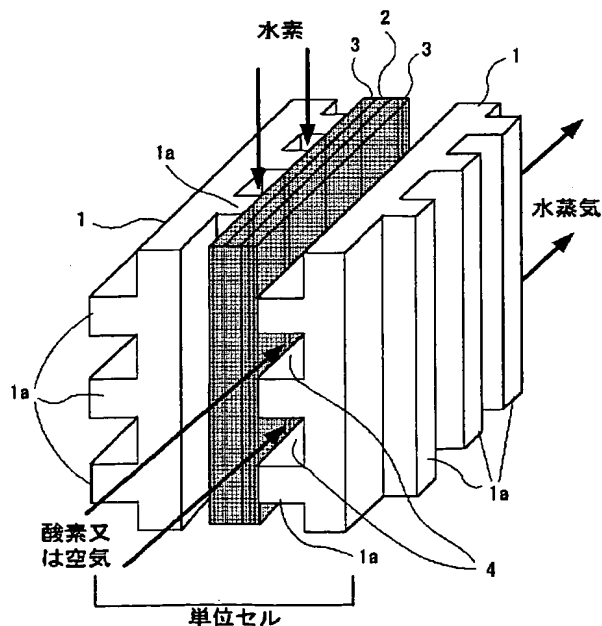
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料電池セパレータ及び固体高分子型燃料電池

(57) 【要約】

【課題】 高強度かつ低弾性であり、優れた可撓性を有する燃料電池セパレータ及び優れた耐振動性及び耐衝撃性を有する固体高分子型燃料電池を得る。

【解決手段】 熱硬化性樹脂と黒鉛粒子とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形してなる片面又は両面にガス供給排出用溝を有する燃料電池セパレータにおいて、上記燃料電池セパレータの J I S K 6 9 1 1 に準拠した曲げ弾性率が 2 0 G P a 以下であり、かつ曲げ強度が 5 0 M P a 以上であることを特徴とする燃料電池セパレータ及びこの燃料電池セパレータを一部又は全部に用いて組み立てた固体高分子型燃料電池。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 熱硬化性樹脂と黒鉛粒子とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形してなる片面又は両面にガス供給排出用溝を有する燃料電池セパレータにおいて、上記燃料電池セパレータのJIS K6911に準拠した曲げ弾性率 M_1 (GPa)と曲げ強度 M_2 (MPa)とが下記関係式を満たすことを特徴とする燃料電池セパレータ。

$$900 \leq M_1 \times M_2 \leq 2000$$

$$2 \leq M_2 / M_1 \leq 10$$

【請求項2】 熱硬化性樹脂と黒鉛粒子とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形してなる片面又は両面にガス供給排出用溝を有する燃料電池セパレータに

粒径

10 μ m未満

10 μ m以上50 μ m未満

50 μ m以上100 μ m未満

100 μ m以上200 μ m未満

200 μ m以上

【請求項5】 上記黒鉛粒子が針状黒鉛粒子である請求項3又は4記載の燃料電池セパレータ。

【請求項6】 黒鉛粒子の添加量が熱硬化性樹脂100質量部に対して200～900質量部である請求項3乃至5のいずれか1項記載の燃料電池セパレータ。

【請求項7】 熱硬化性樹脂と黒鉛粒子とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形してなる片面又は両面にガス供給排出用溝を有する燃料電池セパレータにおいて、上記燃料電池セパレータのJIS K6911に準拠した曲げ弾性率 M_1 (GPa)と曲げ強度 M_2 (MPa)とが下記関係式を満たす請求項3乃至6のいずれか1項記載の燃料電池セパレータ。

$$900 \leq M_1 \times M_2 \leq 2000$$

$$2 \leq M_2 / M_1 \leq 10$$

【請求項8】 熱硬化性樹脂と黒鉛粒子とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形してなる片面又は両面にガス供給排出用溝を有する燃料電池セパレータにおいて、上記燃料電池セパレータのJIS K6911に準拠した曲げ弾性率が20GPa以下であり、かつ曲げ強度が50MPa以上である請求項3乃至6のいずれか1項記載の燃料電池セパレータ。

【請求項9】 固体高分子電解質膜を挟む一対の電極と、該電極を挟んでガス供給排出用流路を形成する一対のセパレータとから構成される単位セルを多数並設した構造を有する固体高分子型燃料電池において、上記燃料電池中の全セパレータの一部又は全部として請求項1乃至8のいずれか1項記載の燃料電池セパレータを用いたことを特徴とする固体高分子型燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、高強度かつ低弾性

において、上記燃料電池セパレータのJIS K6911に準拠した曲げ弾性率が20GPa以下であり、かつ曲げ強度が50MPa以上であることを特徴とする燃料電池セパレータ。

【請求項3】 熱硬化性樹脂と黒鉛粒子とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形してなる片面又は両面にガス供給排出用溝を有する燃料電池セパレータにおいて、上記黒鉛粒子として平均粒径が20～100 μ mであり、かつ最大粒径が240～550 μ mの黒鉛粒子を用いたことを特徴とする燃料電池セパレータ。

【請求項4】 上記黒鉛粒子の粒度分布が下記の通りである請求項3記載の燃料電池セパレータ。

割合

5～20質量%

15～75質量%

15～60質量%

5～25質量%

残部

であり、優れた可撓性を有する燃料電池セパレータ及び優れた耐振動性及び耐衝撃性を有する固体高分子型燃料電池に関し、特に自動車、ハイブリッドカー、小型船舶等の移動用電源として好適な燃料電池セパレータ及びこの燃料電池セパレータを一部又は全部に用いた固体高分子型燃料電池に関する。

【0002】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】 燃料電池は、水素等の燃料と大気中の酸素とを電池に供給し、これらを電気化学的に反応させて水を作り出すことにより直接発電させるものであり、高エネルギー変換可能で、環境性に優れていることから、小規模地域発電、家庭用発電、キャンプ場等での簡易電源、自動車、ハイブリッドカー、小型船舶等の移動用電源、人工衛星、宇宙開発用電源等の各種用途に開発が進められている。

【0003】 このような燃料電池、特に固体高分子型燃料電池は、図1に示したように、板状体の両側面に水素、酸素などのガス供給排出用溝4を形成するための凸部1aを複数個備えた2枚のセパレータ1、1と、これらセパレータ間に固体高分子電解質膜2と、ガス拡散電極（カーボンペーパー）3、3とを介在させてなる単電池（単位セル）を数十個～数百個並設して（これをスタックという）なる電池本体（モジュール）から構成されている。

【0004】 上記燃料電池セパレータには、各単位セルに導電性を持たせると共に、単位セルに供給される燃料及び空気（酸素）の通路確保、分離境界膜としての役割を果たすため、高電気導電性、高ガス不浸透性、（電気）化学的安定性などの諸性能が要求されている。この場合、燃料電池では単位セルから取り出せる電圧が低く、実用規模（～数100kW）の電池出力を得るため

には、単位セルを数十個～数百個並設することが必要となる。このように多数の単位セルを並設することからセパレータ等の構造部材には高い厚み精度が要求されると共に、セパレータとガス拡散電極との間の導通性を確保するため、セパレータには高い面精度及び寸法安定性が必要とされる。

【0005】従来、燃料電池セパレータに用いられる材料としてはステンレス、チタン等の金属材料やガラス状カーボン等の炭素材料などが提案されているが、いずれも性能面、及び価格面などにおいて十分なものではなかった。

【0006】また近年、熱硬化性樹脂と黒鉛粒子とを主成分とする炭素材料により成形された燃料電池セパレータが提案されているが、かかる燃料電池セパレータでは、必要な導電性を付与するため、黒鉛粒子を多量に添加する必要があり、高導電性かつ高強度であっても歪み量が小さく、可撓性に欠け、燃料電池に組立て時の締め付けなどにより割れが生じたり、自動車、ハイブリッドカー、小型船舶等の移動用電源として用いた場合、強い振動や衝撃によりセパレータが破損してしまうという問題があった。

【0007】本発明は、上記事情に鑑みなされたもので、低弾性、かつ高強度であり、組立時の締め付けにより破損することがなく、高い電気導電性、高ガス不浸透性、高強度、(電気)化学的安定性、高寸法精度などの燃料セパレータに要求される諸性能を全て満たした高性能な燃料電池セパレータ及びこの燃料電池セパレータを一部又は全部に用いた耐振動性及び耐衝撃性に優れた固体高分子型燃料電池を提供することを目的とする。

【0008】

【課題を解決するための手段及び発明の実施の形態】本発明者は、上記目的を達成するため、熱硬化性樹脂と黒鉛粒子とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形してなる燃料電池セパレータの曲げ強度と歪み量との関係について鋭意検討を重ねた結果、曲げ強度を大きくするだけではなく、曲げ弾性率を小さく(歪み量を大きく)することが可撓性に優れた燃料電池セパレータを得る上で効果的であることを知見した。

【0009】即ち、図3に示した曲げ強度と歪み量との関係から、曲げ強度が高く、歪み量の小さい比較例1、及び曲げ強度及び歪み量がともに小さい比較例2は、いずれも材料の弾性限度内における曲げ応力と歪みとの比である曲げ弾性率(即ち、図3の曲げ強度-歪み曲線における傾きに相当する)がかなり大きく、このため、比較例1、2は実施例1、2に比べて可撓性が低いことが認められる。従って良好な可撓性を有し、高い厚み精度、面精度、耐振動性及び耐衝撃性を備えた燃料電池セパレータを得るためには、曲げ強度を高くし、かつ曲げ弾性率を小さく(歪み量を多く)することが重要であることを知見した。

【0010】また、従来から、熱硬化性樹脂と黒鉛粒子とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形してなる燃料電池セパレータにおいて、黒鉛粒子の平均粒径を小さくすると導電性は低下するが強度は向上する傾向がある一方、黒鉛粒子の平均粒径を大きくすると導電性は高くなるが強度は低下する傾向があることは知られており、高い導電性と高強度を有するように黒鉛粒子の配合量とその平均粒径を調整することは試みられていたが、本発明者は、単に黒鉛粒子の平均粒径と配合量を調整するだけでなく、粒径の大きい黒鉛粒子の割合を多くし、粒度分布の幅(最大粒径-最小粒径)を広くすることが、高い曲げ強度を維持しつつ、曲げ弾性率を低下させること(歪み量が多くなること)に効果的であることを知見した。

【0011】即ち、図4に示したように、粒度分布の幅(最大粒径-最小粒径)が狭く、最大粒径の小さい比較例1～3、特に鱗片状黒鉛粒子を用いた比較例1、2は、黒鉛粒子の粒度分布の幅が広く、最大粒径が大きく、粒径の大きい黒鉛粒子の割合が多い針状黒鉛粒子を用いた実施例1、2に比べて、図3の結果から曲げ強度、曲げ弾性率、歪み量が劣ることが認められる。従って黒鉛粒子の最大粒径を大きくし、粒度分布の幅を広くすることが高い曲げ強度を維持しつつ、曲げ弾性率を低下させること(歪み量が多くなること)に効果的であることを知見した。

【0012】そして、本発明者が、上記知見に基づき更に鋭意検討を進めた結果、熱硬化性樹脂と黒鉛粒子とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形してなる片面又は両面にガス供給排出用溝を有する燃料電池セパレータのJIS K 6911に準拠した曲げ弾性率 M_1 (GPa)と曲げ強度 M_2 (MPa)とが、 $900 \leq M_1 \times M_2 \leq 2000$ 、 $2 \leq M_2/M_1 \leq 10$ の関係式を満たすと共に、曲げ弾性率が20GPa以下であり、かつ曲げ強度が50MPa以上である可撓性に優れた燃料電池セパレータが、意外にも、黒鉛粒子として平均粒径20～100 μ m、最大粒径240～550 μ mの粒径の大きい黒鉛粒子の割合を多くし、粒度分布の幅(最大粒径-最小粒径)を広くした黒鉛粒子、好ましくは針状黒鉛粒子を用いることにより達成し得、この可撓性に優れた燃料電池セパレータは燃料電池を組み立てる際の締め付けによる変形で割れたり、強い振動や衝撃が加わった場合にもこの振動や衝撃を吸収して破損することがなく、この燃料電池セパレータを一部又は全部に用いた固体高分子型燃料電池は優れたガスシール性と耐振動性及び耐衝撃性を備えており、特に自動車、ハイブリッドカー、小型船舶等の移動用電源として好適なものであることを見出し、本発明をなすに至った。

【0013】従って、本発明は、下記の燃料電池セパレータ及び固体高分子型燃料電池を提供する。

請求項1：熱硬化性樹脂と黒鉛粒子とを主成分とする燃

料電池セパレータ用組成物を成形してなる片面又は両面にガス供給排出用溝を有する燃料電池セパレータにおいて、上記燃料電池セパレータのJIS K 6911に準拠した曲げ弾性率 M_1 (GPa)と曲げ強度 M_2 (MPa)とが下記関係式を満たすことを特徴とする燃料電池セパレータ。

$$900 \leq M_1 \times M_2 \leq 2000$$

$$2 \leq M_2 / M_1 \leq 10$$

請求項2：熱硬化性樹脂と黒鉛粒子とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形してなる片面又は両面にガス供給排出用溝を有する燃料電池セパレータにおいて、上記燃料電池セパレータのJIS K 6911に準

粒径

10 μ m未満

10 μ m以上50 μ m未満

50 μ m以上100 μ m未満

100 μ m以上200 μ m未満

200 μ m以上

請求項5：上記黒鉛粒子が針状黒鉛粒子である請求項3又は4記載の燃料電池セパレータ。

請求項6：黒鉛粒子の添加量が熱硬化性樹脂100質量部に対して200～900質量部である請求項3乃至5のいずれか1項記載の燃料電池セパレータ。

請求項7：熱硬化性樹脂と黒鉛粒子とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形してなる片面又は両面にガス供給排出用溝を有する燃料電池セパレータにおいて、上記燃料電池セパレータのJIS K 6911に準拠した曲げ弾性率 M_1 (GPa)と曲げ強度 M_2 (MPa)とが下記関係式を満たす請求項3乃至6のいずれか1項記載の燃料電池セパレータ。

$$900 \leq M_1 \times M_2 \leq 2000$$

$2 \leq M_2 / M_1 \leq 10$ 請求項8：熱硬化性樹脂と黒鉛粒子とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形してなる片面又は両面にガス供給排出用溝を有する燃料電池セパレータにおいて、上記燃料電池セパレータのJIS K 6911に準拠した曲げ弾性率が20GPa以下であり、かつ曲げ強度が50MPa以上である請求項3乃至6のいずれか1項記載の燃料電池セパレータ。

請求項9：固体高分子電解質膜を挟む一対の電極と、該電極を挟んでガス供給排出用流路を形成する一対のセパレータとから構成される単位セルを多数並設した構造を有する固体高分子型燃料電池において、上記燃料電池中の全セパレータの一部又は全部として請求項1乃至8のいずれか1項記載の燃料電池セパレータを用いたことを特徴とする固体高分子型燃料電池。

【0014】以下、本発明について更に詳しく説明する。本発明の燃料電池セパレータは、JIS K 6911の「熱硬化性プラスチック一般試験方法」に準じて測定した曲げ弾性率 M_1 (GPa)と曲げ強度 M_2 (MPa)とが下記関係式を満たすことを特徴とし、このよう

に曲げ弾性率が20GPa以下であり、かつ曲げ強度が50MPa以上であることを特徴とする燃料電池セパレータ。

請求項3：熱硬化性樹脂と黒鉛粒子とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形してなる片面又は両面にガス供給排出用溝を有する燃料電池セパレータにおいて、上記黒鉛粒子として平均粒径が20～100 μ mであり、かつ最大粒径が240～550 μ mの黒鉛粒子を用いたことを特徴とする燃料電池セパレータ。

請求項4：上記黒鉛粒子の粒度分布が下記の通りである請求項3記載の燃料電池セパレータ。

割合

5～20質量%

15～75質量%

15～60質量%

5～25質量%

残部

に曲げ強度を高くし、かつ曲げ弾性率を低めに設定することにより、可撓性を顕著に高めることができるものである。

$$900 \leq M_1 \times M_2 \leq 2000$$

$$2 \leq M_2 / M_1 \leq 10$$

【0015】上記曲げ弾性率 M_1 (GPa)と曲げ強度 M_2 (MPa)との関係は、 $900 \leq M_1 \times M_2 \leq 2000$ であり、好ましくは $1000 \leq M_1 \times M_2 \leq 1900$ 、より好ましくは $1100 \leq M_1 \times M_2 \leq 1800$ である。また、 $2 \leq M_2 / M_1 \leq 10$ であり、好ましくは2.3 $\leq M_2 / M_1 \leq 8$ 、より好ましくは $3 \leq M_2 / M_1 \leq 6$ である。

【0016】この場合、燃料電池セパレータのJIS K 6911の「熱硬化性プラスチック一般試験方法」に準じて測定した曲げ弾性率は20GPa以下であり、好ましくは4～20GPa、より好ましくは10～20GPa、更に好ましくは15～20GPaである。また、曲げ強度は50MPa以上であり、好ましくは55MPa以上、より好ましくは60～100MPa、更に好ましくは60～80MPaである。なお、歪み量は好ましくは0.9mm以上、より好ましくは1.0mm以上、更に好ましくは1.1～2.0mmである。

【0017】曲げ弾性率及び曲げ強度が上記関係式及び範囲を外れると、高強度であるが脆くなり、燃料電池に組立て時の締め付けで割れたり、自動車、ハイブリッドカー、小型船舶等の移動用電源として用いた場合の強い振動や衝撃により破損してしまう。

【0018】このような燃料電池セパレータは、(A)熱硬化性樹脂と(B)黒鉛粒子とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を成形することにより得ることができるが、これら(A)、(B)成分の種類、配合量は特に制限されず、上記曲げ弾性率及び曲げ強度の範囲を

達成するように選定することができる。これらの中では（Ｂ）成分の黒鉛粒子の選定が重要であり、上記曲げ弾性率及び曲げ強度の関係式及び範囲をより効果的に達成する点からは、平均粒径が $20\sim 100\mu\text{m}$ であり、かつ最大粒径 $240\sim 550\mu\text{m}$ の黒鉛粒子を用いることが好ましい。

【0019】上記（Ｂ）成分の黒鉛粒子は、上記平均粒径、及び最大粒径を満たせば特に制限されず、天然に産出したもの（天然黒鉛）であっても人工的に製造したもの（人造黒鉛）であってもよい。この場合、平均粒径は好ましくは $25\sim 80\mu\text{m}$ 、より好ましくは $30\sim 60\mu\text{m}$ であり、最大粒径は好ましくは $300\sim 500\mu\text{m}$ 、より好ましくは $350\sim 500\mu\text{m}$ である。黒鉛粒子の平均粒径及び最大粒径が上記範囲を外れると燃料電池

粒径

10 μm 未満
10 μm 以上50 μm 未満
50 μm 以上100 μm 未満
100 μm 以上200 μm 未満
200 μm 以上

【0022】上記（Ｂ）成分の黒鉛粒子の添加量は、（Ａ）成分の熱硬化性樹脂100質量部に対して200～900質量部、好ましくは250～700質量部、より好ましくは300～600質量部である。黒鉛粒子の添加量が少なすぎると抵抗値が高くなり、導電性が不十分となる場合がある。一方、多すぎると成形時の熱硬化性樹脂と黒鉛粒子との混合物の流れ性が不良となる場合がある。

【0023】上記（Ａ）成分の熱硬化性樹脂としては、特に制限されず、例えばレゾールタイプのフェノール樹脂、ノボラックタイプのフェノール樹脂に代表されるフェノール系樹脂、フルフリルアルコール樹脂、フルフリルアルコールフルフラール樹脂、フルフリルアルコールフェノール樹脂などのフラン系樹脂、ポリイミド樹脂、ポリカルボジイミド樹脂、ポリアクリロニトリル樹脂、ビレンーフェナントレン樹脂、ポリ塩化ビニル樹脂、エポキシ樹脂、ユリア樹脂、ジアリルフタレート樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、メラミン樹脂などが挙げられ、これらの1種を単独で又は2種以上を組み合わせて用いることができる。中でも、フェノール樹脂、エポキシ樹脂又はこれらの混合樹脂が好ましい。

【0024】なお、本発明の燃料電池セパレータ用組成物には、上記（Ａ）、（Ｂ）成分以外にも、強度、離型性、耐加水分解性、導電性等の向上を目的として繊維基材、離型剤、金属粉末、耐加水分解剤などを必要に応じて添加することができる。

【0025】上記繊維基材としては、例えば鉄、銅、真鍮、青銅、アルミニウム等の金属繊維、セラミック繊維、チタン酸カリウム繊維、ガラス繊維、炭素繊維、ロックウール、ウォラストナイト、セピオライト、アタパ

池セパレータの可撓性が不十分となり、燃料電池に組立時の締め付けによる変形で割れが生じたり、ガス不浸透性が低下して本発明の目的を達成できなくなる。

【0020】また、黒鉛粒子の形状は層状、塊状、鱗片状、及び球状のものよりも針状のものが好適に用いられ、中でもシャープな針状の黒鉛粒子よりも幅広い（ブロード）針状の黒鉛粒子の方が好ましい。

【0021】本発明の（Ｂ）成分の黒鉛粒子は、上記性状を有するものであるが、その粒度分布は、図4に示したように、粒径の大きいものの含有量が多く、かつ粒度分布の幅（最大粒径－最小粒径）が広いことが好ましく、具体的な粒度分布は下記の通りであることが好ましい。

割合（質量％）

5～20％、好ましくは10～20％
15～75％、好ましくは20～65％
15～60％、好ましくは15～40％
5～25％、好ましくは5～15％

残部

ルジャイト、人工鉱物質繊維等の無機質繊維、アラミド繊維、ポリイミド繊維、ポリアミド繊維、フェノール繊維、セルロース、アクリル繊維等の有機質繊維などが挙げられ、これらの1種を単独で又は2種以上を組み合わせて用いることができる。この場合、繊維基材の配合量は（Ａ）成分の熱硬化性樹脂100質量部に対して0～10質量部である。

【0026】離型剤としては、特に制限されず、シリコーン系離型剤、フッ素系離型剤、脂肪酸金属系離型剤、アマイド系離型剤、ワックス系離型剤などが挙げられ、特にカルナバワックス、ステアリン酸、モンタン酸等の内部離型剤が好適に用いられる。この場合、離型剤の配合量は（Ａ）成分の熱硬化性樹脂100質量部に対して0～3質量部である。

【0027】金属粉末としては、例えばステンレス、金、銀、銅、白金、チタン、アルミニウム、ニッケル等を用いることができる。この場合、金属粉末の平均粒径は通常 $5\sim 30\mu\text{m}$ である。

【0028】本発明の燃料電池セパレータの製造方法は、（Ａ）成分の熱硬化性樹脂と（Ｂ）成分の黒鉛粒子とを主成分とする燃料電池セパレータ用組成物を均一に混合してコンパウンドとし、このコンパウンドをコンプレッション成形、インジェクション成形、又はトランスファ成形することにより製造することができる。

【0029】この場合、コンプレッション成形、インジェクション成形、及びトランスファ成形は普通に行われている方法及び条件を適宜採用することができる。例えば、（Ａ）成分の熱硬化性樹脂としてフェノール樹脂を用いた場合には、コンパウンドを所定形状のセパレータ成形用金型内に投入し、 $150\sim 160^\circ\text{C}$ 、 $10\sim 50$

MPaで5～10分間熱圧成形した後、130～200℃で0～72時間熱処理することにより本発明燃料電池セパレータが得られる。

【0030】なお、本発明の燃料電池セパレータの製造方法は、上記コンプレッション成形、インジェクション成形、又はトランスファ成形以外にも、射出圧縮成形、静水圧成形、ベルトプレス、ロール成形等の従来公知の成形方法から選ばれる1種又は2種以上の成形方法を組み合わせて行うことができる。

【0031】本発明の燃料電池セパレータは、JIS K7126の「プラスチックフィルムのガス透過度評価方法」のB法（等圧法）に準じて、燃料電池セパレータ用組成物から2mm厚φ100の試験片を作製し、23℃での N_2 ガス透過度（ $cm^3/m^2 \cdot 24hr \cdot atm$ ）を測定した結果、 $20cm^3/m^2 \cdot 24hr \cdot atm$ 以下、好ましくは $10cm^3/m^2 \cdot 24hr \cdot atm$ 以下、より好ましくは $5cm^3/m^2 \cdot 24hr \cdot atm$ 以下である。ガス透過度が大きすぎると燃料電池セパレータからガス漏れが生じて、本発明の目的及び作用効果を達成することができない場合がある。

【0032】このようにして得られる燃料電池セパレータは、JIS H0602のシリコン単結晶及びシリコンウェーハの4探針法による抵抗率測定方法に準拠して測定した固有抵抗が $200m\Omega \cdot cm$ 以下、好ましくは $50m\Omega \cdot cm$ 以下、より好ましくは2～30 $m\Omega \cdot cm$ である。

【0033】次に、本発明の固体高分子型燃料電池は、固体高分子電解質膜を挟む一対の電極と、該電極を挟んでガス供給排出用流路を形成する一対のセパレータとから構成される単位セルを多数並設した構造を有し、この燃料電池中のセパレータとして上記本発明の燃料電池セパレータを用いたものである。

【0034】この場合、固体高分子型燃料電池は、図1に示したように、板状体の両側面に複数個の水素、酸素などのガス供給排出用溝4を形成するための凸部1aを備えた2枚のセパレータ1、1と、これらセパレータ間に固体高分子電解質膜2と、ガス拡散電極（カーボンペーパー）3、3とを介在させてなる単電池（単位セル）を数十個以上並設して（これをスタックという）なる電池本体（モジュール）から構成されている。

【0035】本発明の燃料電池は、その燃料電池の全セパレータの一部又は全部として上記本発明の燃料電池セパレータを用いるものである。具体的には、燃料電池中の全セパレータの50%以上、好ましくは50～100%、より好ましくは70～100%、更に好ましくは80～100%が本発明の燃料電池セパレータであることが好ましい。燃料電池中の全セパレータに占める本発明の燃料電池セパレータの割合が少なすぎると、ガスシール性、耐振動性及び耐衝撃性が低下して、本発明の目的及び作用効果を達成できなくなる場合がある。なお、本

発明燃料電池セパレータ以外のセパレータとしては燃料電池に普通に用いられているセパレータを用いることができる。

【0036】ここで、上記固体高分子電解質膜としては、固体高分子型燃料電池に普通に用いられているものを使用することができる。例えばフッ素系樹脂により形成されたプロトン伝導性のイオン交換膜であるポリトリフルオロスチレンスルホン酸、パーフルオロカーボンスルホン酸（商品名：Nafion）などを用いることができる。この電解質膜の表面には、触媒としての白金又は白金と他の金属からなる合金を担持したカーボン粉を調製し、この触媒を担持したカーボン粉をパーフルオロカーボンスルホン酸を含む低級脂肪酸族アルコールと水の混合溶液（Nafion117溶液）等の有機溶剤に分散させたペーストを塗布している。

【0037】上記固体高分子電解質膜を挟む一対の電極は、カーボンペーパー、カーボンフェルト、炭素繊維からなる糸で織成したカーボクロスなどにより形成することができる。

【0038】これら電解質膜及び電極は、一対の電極の間に電解質膜を介在させ、120～130℃で熱圧着することにより一体化する。なお、接着剤を用いて電解質膜と一対の電極とを接合して一体化することもできる。

【0039】このようにして一体化した電解質膜及び電極を一対のセパレータの間に燃料ガスを供給排出可能な流路を形成するように取り付けて、単位セルが得られる。この場合、セパレータの電極と接する部分（リブ）に接着剤を塗布して取り付ける方法などを採用することができる。

【0040】本発明の固体高分子型燃料電池は、この燃料電池中の全セパレータの一部（好ましくは50%以上）又は全部として本発明の燃料電池セパレータを用いることにより、高いガスシール性と優れた耐振動性及び耐衝撃性を有し、特に自動車、ハイブリッドカー、小型船舶等の移動用電源として好適なものである。

【0041】なお、本発明の固体高分子型燃料電池は、自動車、ハイブリッドカー、小型船舶等の移動用電源以外にも、小規模地域発電、家庭用発電、キャンプ場等での簡易電源、人工衛星、宇宙開発用電源等の各種用途に幅広く用いることができるものである。

【0042】

【発明の効果】本発明の燃料電池セパレータは、曲げ強度が高く、曲げ弾性率が低い優れた弾性体であり、このセパレータと接する構造部材の面精度が低くても、導通性のために必要な面接触を十分確保することができる。また、セパレータの面精度が低くても、導通性のための十分な面接触を確保し得、スタックのたわみを吸収することができると共に、セパレータの厚み精度にバラツキがあったり、反りがあったり、燃料電池に組立て時の締め付けにより全体の厚みを調整することができるので、

高い精度で高性能な固体高分子型燃料電池を組立てることが可能なものである。

【0043】また、本発明の燃料電池セパレータを一部又は全部に用いて組み立てた固体高分子型燃料電池は、高いガスシール性及び優れた耐振動性及び耐衝撃性を備えており、振動や衝撃を吸収することができ、特に定常的に大小様々な振動や衝撃が加わる自動車、ハイブリッドカー、小型船舶等の移動用電源として好適なものである。

【0044】

【実施例】以下、実施例及び比較例を示し、本発明を更

粒径
10 μ m未満
10 μ m以上50 μ m未満
50 μ m以上100 μ m未満
100 μ m以上200 μ m未満
200 μ m以上

【0046】得られた試験片についてJIS K6911の熱硬化性プラスチックの一般試験方法に準じて支点間距離80mmでの曲げ強度、曲げ弾性率、歪みを測定した。また、JIS H0602のシリコン単結晶及びシリコンウェーハの4探針法による抵抗率測定方法に準拠して固有抵抗を測定した。結果を表2及び図3に示す。

【0047】次に、実施例1のコンパウンドを図2(A)、(B)に示したような片面又は両面にガス供給排出用溝4を有する形状に成形できるセパレータ成形用金型内に投入し、150℃、19.6MPaで5分間熱圧成形して長さ400mm、幅230mm、厚み2.3mmの燃料電池セパレータを作成した。得られたセパレータについて下記方法により諸性能を評価した。結果を表2に示す。

【0048】<可撓性(弾性)>:両端を固定したセパレータの中央部に静的荷重を加えた際の撓みの有無により下記基準で評価した。

○:あり

△:僅かに撓む

×:なし

【0049】<組立時の安定性>:セパレータ200枚を用いて燃料電池を組み立て、その組立ての際の締め付けによる変形でのセパレータの割れ発生の有無を下記基準により評価した。

粒径
10 μ m未満
10 μ m以上50 μ m未満
50 μ m以上100 μ m未満
100 μ m以上200 μ m未満

【0053】得られた試験片について同様に物性値を測定した。結果を表2及び図3に示す。また、実施例1と同様に燃料電池セパレータを作成し、同様に性能評価を

に具体的に説明するが、本発明は下記実施例に制限されるものではない。

【0045】〔実施例1〕表1に示したように、ノボラック型フェノール樹脂19質量部と、平均粒径30 μ m、最大粒径430 μ mの針状黒鉛(ブロード)81質量部とをニーダーで混合し、コンパウンドを得た。このコンパウンドを150℃、19.6MPaで5分間熱圧成形して100mm×10mm×4mmの大きさの試験片を作成した。なお、黒鉛粒子の粒度分布は図4及び下記に示した通りである。

割合
13.4質量%
52.6質量%
24.0質量%
8.5質量%
1.5質量%

○:割れ発生なし

△:割れが少し発生

×:割れ発生が多数あり

【0050】<ガス透過度>:JIS K7126の「プラスチックフィルム」のガス透過度評価方法」のB法(等圧法)に準じて、セパレータから切り出した2mm厚φ100の試験片の23℃におけるN₂ガス透過度(cm³/m²・24hr・atm)を測定し、下記基準で評価した。

○:20未満

△:20~10³

×:10³超

【0051】〔実施例2〕表1に示したように、ノボラック型フェノール樹脂をレゾール型フェノール樹脂にした以外は実施例1と同様にして試験片を作成し、同様に物性値を測定した。結果を表2及び図3に示す。なお、黒鉛粒子の粒度分布は図4に示したように実施例1と同じであった。また、実施例1と同様に燃料電池セパレータを作成し、同様に性能評価を行った。結果を表2に示す。

【0052】〔比較例1〕表1に示したように、針状黒鉛の代わりに平均粒径30 μ m、最大粒径170 μ mの鱗片状黒鉛を使用した以外は実施例1と同様にして比較例1の試験片を作成した。なお、黒鉛粒子の粒度分布は図4及び下記に示した通りである。

割合
8.4質量%
62.9質量%
24.7質量%
4.0質量%

行った。結果を表2に示す。

【0054】〔比較例2〕表1に示したように、針状黒鉛の代わりに平均粒径55 μ m、最大粒径350 μ mの

鱗片状黒鉛を使用した以外は実施例2と同様にして比較例2の試験片を作成した。なお、黒鉛粒子の粒度分布は

粒径
10 μ m未満
10 μ m以上50 μ m未満
50 μ m以上100 μ m未満
100 μ m以上200 μ m未満
200 μ m以上

【0055】得られた試験片について同様に物性値を測定した。結果を表2及び図3に示す。また、実施例1と同様に燃料電池セパレータを作成し、同様に性能評価を行った。結果を表2に示す。

【0056】〔比較例3〕表1に示したように、平均粒

粒径
10 μ m未満
10 μ m以上50 μ m未満
50 μ m以上100 μ m未満
100 μ m以上200 μ m未満
200 μ m以上

【0057】得られた試験片について上記同様に物性値を測定した。結果を表2及び図3に示す。また、実施例1と同様に燃料電池セパレータを作成し、同様に性能評

図4及び下記に示した通りである。

割合
2.2質量%
40.6質量%
30.1質量%
22.4質量%
4.7質量%

径30 μ m、最大粒径230 μ mの針状黒鉛（シャープ）とした以外は実施例1と同様にして比較例3の試験片を作成した。なお、黒鉛粒子の粒度分布は図4及び下記に示した通りである。

割合
6.0質量%
64.0質量%
26.7質量%
3.0質量%
0.3質量%

価を行った。結果を表2に示す。

【0058】

【表1】

	熱硬化性樹脂(質量部)		黒鉛粒子			
	ノボラック型	レゾール型	平均粒径 (μ m)	最大粒径 (μ m)	形状	添加量 (質量部)
	フェノール樹脂	フェノール樹脂				
実施例1	19	—	30	430	針状(ブロード)	81
実施例2	—	19	30	430	針状(ブロード)	81
比較例1	19	—	30	170	鱗片状	81
比較例2	—	19	55	350	鱗片状	81
比較例3	19	—	30	230	針状(シャープ)	81

【0059】

【表2】

	実施例1	実施例2	比較例1	比較例2	比較例3
曲げ弾性率 M_1 (GPa)	17.1	17.3	38.3	31.0	19.7
曲げ強度 M_2 (MPa)	57	66	51	30	42
$M_1 \times M_2$	974.7	1141.8	1953.3	930	827.4
M_2/M_1	3.3	3.8	1.3	0.97	2.13
歪み(mm)	1.10	1.45	0.63	0.45	0.82
固有抵抗($m\Omega \cdot cm$)	28	19	10	15	25
可撓性	○	○	×	×	×
組立時の安定性	○	○	×	×	×
ガス透過性	○	○	×	×	×

【0060】表1、2及び図3、4の結果から、平均粒径20～100 μ m、最大粒径240～550 μ mの針状黒鉛粒子を用い、曲げ弾性率が20GPa以下であり、かつ曲げ強度が50MPa以上である実施例1、2

の燃料電池セパレータは優れた可撓性を有し、燃料電池を組み立てる際にヒビや割れが発生することのない高品質なものであることが認められる。

【0061】〔実施例3〕 固体高分子型燃料電池

(1)

固体高分子電解質膜（商品名：Nafion）を挟む一対の電極としてカーボンペーパー（株式会社ケミックス製）を用いた。これらを常法により接合して一体化電極を作成した。この一体化電極を実施例1で作成した一対の燃料電池セパレータで挟んで燃料ガス供給排出用流路を有する単位セルを得た。この単位セルを50個並設し、ボルトとナットで締め付けて燃料電池を組み立てた。この燃料電池は、充放電可能であり、燃料電池として有効に機能することが認められた。また、組み立てた燃料電池について車載を想定した振動及び衝撃を1000回加えたところ、セパレータに破損は見られなかった。

【0062】〔実施例4〕 固体高分子型燃料電池

(2)

固体高分子電解質膜（商品名：Nafion）を挟む一対の電極としてカーボンペーパー（株式会社ケミックス製）を用いた。これらを常法により接合して一体化電極を作成した。この一体化電極を実施例2で作成した一対の燃料電池セパレータで挟んで燃料ガス供給排出用流路を有する単位セルを得た。この単位セルを100個並設し、ボルトとナットで締め付けて燃料電池を組み立てた。この燃料電池は、充放電可能であり、燃料電池として有効に機能することが認められた。また、組み立てた燃料電池について車載を想定した振動及び衝撃を1000回加えたところ、セパレータに破損は見られなかった。

【0063】〔比較例4〕 固体高分子型燃料電池

(3)

固体高分子電解質膜（商品名：Nafion）を挟む一

対の電極としてカーボンペーパー（株式会社ケミックス製）を用いた。これらを常法により接合して一体化電極を作成した。この一体化電極を比較例1で作成した一対の燃料電池セパレータで挟んで燃料ガス供給排出用流路を有する単位セルを得た。この単位セルを100個並設し、ボルトとナットで締め付けて燃料電池を組み立てたところ、セパレータに割れやヒビが多数発生し、ガス漏れが生じ、燃料電池として有効に機能しなかった。また、組み立てた燃料電池について車載を想定した振動及び衝撃を1000回加えたところ、更にセパレータに破損が大量に生じた。なお、比較例2、3の燃料電池セパレータを用いて組み立てた固体高分子型燃料電池についても上記比較例4と同様の結果が得られた。

【図面の簡単な説明】

【図1】燃料電池の一例を示した斜視図である。

【図2】本発明の一実施例に係る燃料電池セパレータの斜視図を示し、(A)は両面にガス供給排出用溝を有するもの、(B)は片面にガス供給排出用溝を有するものである。

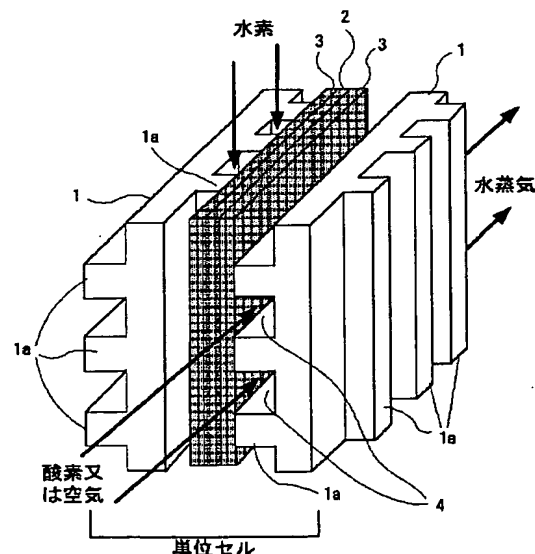
【図3】実施例及び比較例の曲げ強度と歪みとの関係を示したグラフである。

【図4】実施例及び比較例の黒鉛の粒度分布を示したグラフである。

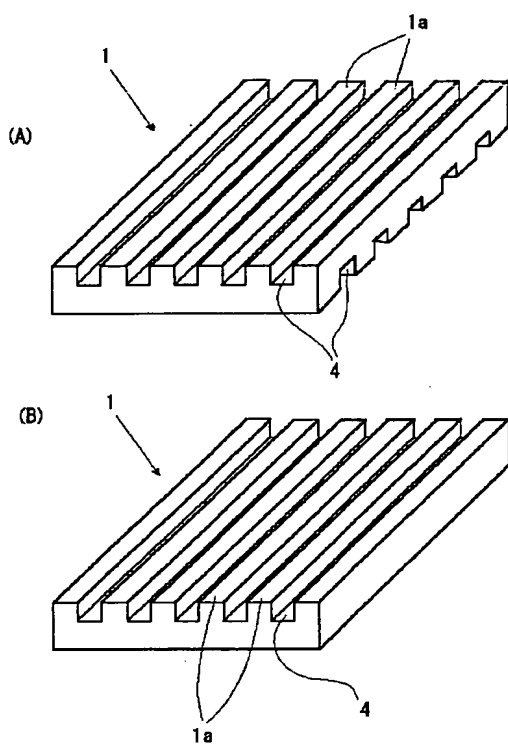
【符号の説明】

- 1 セパレータ
- 1a 凸部
- 2 固体高分子電解質膜
- 3 ガス拡散電極
- 4 ガス供給排出用溝（流路）

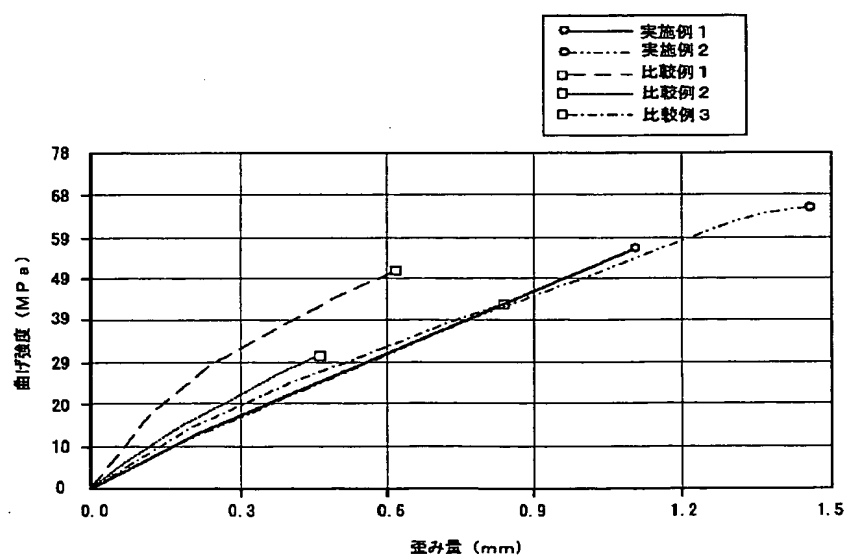
【図1】



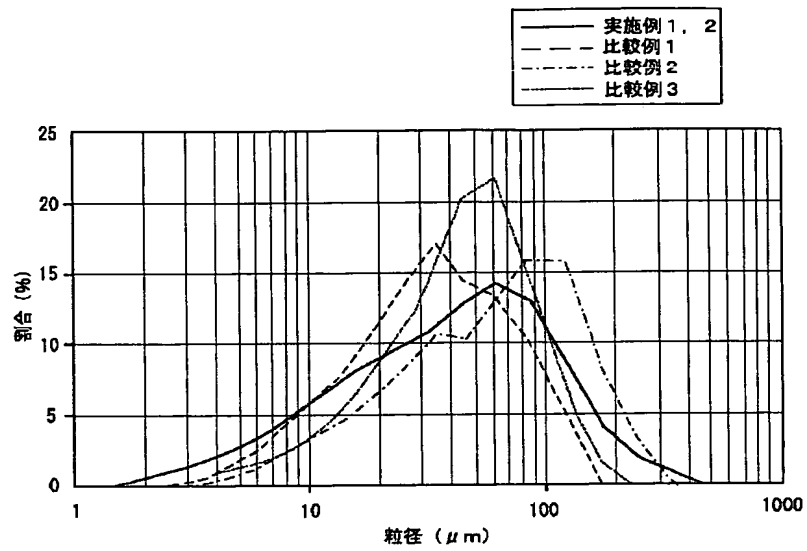
【図2】



【図3】



【図4】



フロントページの続き

(72)発明者 堀内 歩
千葉県千葉市緑区大野台 1-2-3 日清
紡績株式会社研究開発センター内

Fターム(参考) 5H026 AA06 CC03 EE06 EE18 HH00
HH01 HH04

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☒ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.